

**Abstract of JP2001114706**

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a method and device for efficiently and stably operating a gas phase oxidation reaction system for hydrocarbons having a process to recover unreacted hydrocarbon and circulate in a reaction vessel.

**SOLUTION:** In a gas phase oxidation reaction system equipped with at least one reaction apparatus in which a raw material containing hydrocarbons, oxygen and air or an inactive gas is fed, one or more of separators connected to the reaction apparatus and a recycle loop for returning a discharged flow from either one or more of the separators to the reaction apparatus as a part of the feed flow, the gas phase oxidation reaction system is characterized in that a first controlling system for controlling one or both of the sum total flow at the inlet of the reaction apparatus or the discharged flow from the reaction apparatus and the discharged flow from one or more of stages of the aforesaid one or more of separators and a second controlling system for controlling the composition of the whole feed flow to the reaction apparatus or the gas composition at the outlet of the reaction apparatus or the outlet at either one or more of the outlets of the separators are installed to be parallel.

(19)日本国特許庁 (JP)

(12) 公開特許公報 (A)

(11)特許出願公開番号

特開2001-114706

(P2001-114706A)

(43)公開日 平成13年4月24日 (2001.4.24)

(51)Int.Cl.  
C 07 B 61/00  
B 01 J 19/00  
C 07 B 33/00  
C 07 C 17/15

識別記号

3 0 0

3 2 1

3 2 1

C 07 B 33/00

C 07 C 17/15

F I  
C 07 B 61/00  
B 01 J 19/00  
C 07 B 33/00  
C 07 C 17/15

マーク (参考)

C

3 0 0

3 2 1

3 2 1

審査請求 未請求 請求項の数 3 O L (全 7 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願2000-230154(P2000-230154)  
(22)出願日 平成12年7月31日 (2000.7.31)  
(31)優先権主張番号 特願平11-228373  
(32)優先日 平成11年8月12日 (1999.8.12)  
(33)優先権主張国 日本 (JP)

(71)出願人 000005968  
三菱化学株式会社  
東京都千代田区丸の内二丁目5番2号  
(72)発明者 ランディ エム ミラー  
アメリカ合衆国カリフォルニア州 サウザンド オークス チューベロウッド コート 855  
(72)発明者 道家 久人  
岡山県倉敷市潮通三丁目10番地 三菱化学株式会社水島事業所内  
(74)代理人 100070600  
弁理士 横倉 康男

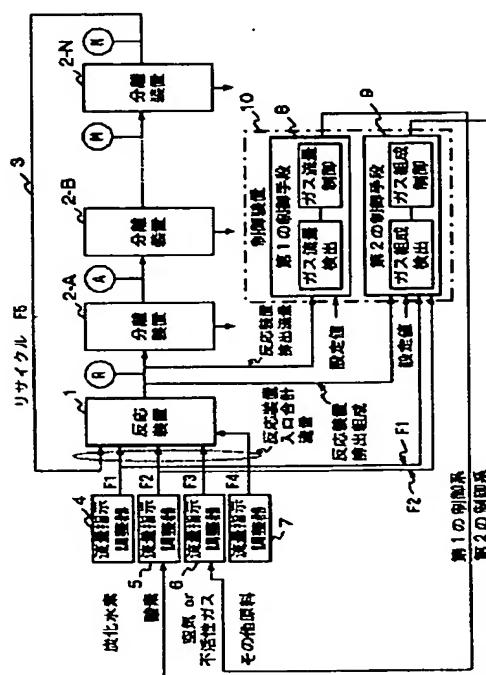
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 気相酸化反応システムとその制御方法及び制御装置

(57)【要約】

【課題】 未反応の炭化水素を回収して反応器に循環させるプロセスを有する炭化水素の気相酸化反応システムを効率的かつ安定に運転するための制御方法及び装置を提供する。

【解決手段】 炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備えた気相酸化反応システムであって、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方又は双方を所望値に制御する第1の制御系と、反応装置への全供給流の組成又は反応装置の出口あるいはいずれか一つ以上の分離装置の出口のガス組成一方または双方を所望値に制御する第2の制御系とを並行して設けたことを特徴とする気相酸化反応システム。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備えた気相酸化反応システムであって、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方又は双方を所望値に制御する第1の制御系と、反応装置への全供給流の組成又は反応装置出口あるいはいずれか一つ以上の分離装置の出口のガス組成の一方または双方を所望値に制御する第2の制御系とを並行して設けたことを特徴とする気相酸化反応システム。

【請求項2】 炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備えた気相酸化反応システムの制御方法であって、第1の制御として、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方あるいは双方を、気相酸化反応システムへ供給する空気又は不活性ガスの流量を変更することにより所望値に制御し、

さらに第2の制御として、反応装置からの排出流と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれかからの排出流との一方あるいは双方における酸素濃度を、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素及び酸素の流量比に基づき、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素の流量又は酸素の流量を変更することにより所望値に制御する、ことを特徴とする気相酸化反応システムの制御方法。

【請求項3】 炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備えた気相酸化反応システムの制御装置であって、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上の分離装置からの排出流量との一方あるいは双方を、気相酸化反応システムへ供給する空気又は不活性ガスの流量を変更することにより所望値に制御する第1の制御手段と、反応装置からの排出流と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれかからの排出流との一方あるいは双方における酸素濃度を、気相酸化反応システムへ供給す

る炭化水素及び酸素の流量比に基づき、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素の流量又は酸素の流量を変更することにより所望値に制御する第2の制御手段と、を有することを特徴とする気相酸化反応システムの制御装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、気相酸化反応システムの制御方法及び制御装置に関するものであり、触媒の存在下で、炭化水素と酸素含有ガスとを反応させる気相酸化反応システムを安定に運転可能にする制御技術を提供する。

## 【0002】

【従来の技術】触媒の存在下で、炭化水素及び酸素含有ガスを反応させる気相酸化反応としては、例えば炭化水素の接触酸化方法があり、炭素数4の炭化水素の酸化による無水マレイン酸の製造や、炭素数3の炭化水素のアンモ酸化によるアクリロニトリルの製造、エチレンのオキシクロリネーションによる二塩化エチレンの製造などが広く知られている。近年、これらの気相酸化反応において、目的とする生成物を効率的に生産するために、反応装置での炭化水素の転化率を低く抑えることで生成物への選択性を向上させる一方で、未反応の炭化水素を回収して反応装置に循環させるリサイクル法が提案されている。

【0003】しかしながら、従来のプロセスでは、例えば反応成績が変化した時に、反応条件（各ガスの流量や、温度、圧力、触媒量）をそれぞれ単独で制御することにより、安定に運転を継続することができたが、リサイクルプロセスの場合は、反応装置を出たガスが再び分離装置等を経由して最終的に反応装置に戻るために、例えば反応成績が変化した時に従来のような反応条件制御を行なおうとしても、リサイクルガスの流量や組成が反応条件の変更の影響で変化するために、そのままで定常な状態に落ち着くことはなく、結果として酸化反応を安定に継続することが困難であった。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、未反応の炭化水素を回収して反応装置に循環させるリサイクルプロセスを有する炭化水素の気相酸化反応システムを、効率的かつ安定に運転するための制御方法及び制御装置を提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明は、炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備えた気相酸化反応システムにおいて、反応装置入口の合計流量を直接あるいは間接

に制御する第1の制御系と、反応装置への供給ガス組成或いは反応装置からの排出ガス組成を所望値に制御する第2の制御系とを並行して設けることにより、システムの効率的かつ安定な運転を可能にするものであり、以下のように構成される。

【0006】(1) 本発明による気相酸化反応システムは、炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備え、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方又は双方を所望値に制御する第1の制御系と、反応装置への全供給流の組成又は反応装置の出口あるいはいずれか一つ以上の分離装置の出口のガス組成の一方または双方を所望値に制御する第2の制御系とを並行して設けた構成を特徴とする。

【0007】(2) 本発明による気相酸化反応システムの制御方法は、炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備えた気相酸化反応システムにおいて、第1の制御として、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方あるいは双方を、気相酸化反応システムへ供給する空気又は不活性ガスの流量を変更することにより所望値に制御し、さらに第2の制御として、反応装置からの排出流と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれかからの排出流との一方あるいは双方における酸素濃度を、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素及び酸素の流量比に基づき、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素の流量又は酸素の流量を変更することにより所望値に制御する、構成を特徴とする。

【0008】(3) 本発明による気相酸化反応システムの制御装置は、炭化水素、酸素、及び空気あるいは不活性ガスを含む原料が供給される少なくとも一つの反応装置と、該反応装置に結合された一つ又はそれ以上の分離装置と、いずれか一つ以上の分離装置からの排出流を供給流の一部として反応装置に戻すリサイクルループとを備え、反応装置入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方あるいは双方を、気相酸化反応システムへ供給する空気又は不活性ガスの流量を変更することにより所望値に制御する第1の制御手段と、反応装置からの排出流と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれかからの排出流との

一方あるいは双方における酸素濃度を、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素及び酸素の流量比に基づき、気相酸化反応システムへ供給する炭化水素の流量又は酸素の流量を変更することにより所望値に制御する第2の制御手段と、を有する構成を特徴とする。

【0009】本発明を適用した気相酸化反応システムの概要構成を、図1に例示的方法で示す。以下、図1に基づき本発明の詳細を説明する。図1の気相酸化反応システムは、少なくとも一つの反応装置1と、一つ又はそれ以上の分離装置2-A～2-Nと、リサイクルループ3とを有する。反応装置1に供給される炭化水素、酸素、空気あるいは不活性ガス及びその他の気相原料の新規供給分は、それぞれ流量指示調整器4、5、6、7により、流量F1、F2、F3、F4に調整される。また図示省略されているが、反応装置1には触媒を存在させている。

【0010】反応装置1からの反応生成物や副生成物、あるいは不要成分は、分離装置2-A～2-Nのそれぞれから任意に取り出されあるいは除去される。R点は反応装置1からの排出流、A点は第一番目の分離装置2-Aからの排出流、…、N点は第N番目の分離装置2-Nからの排出流を示す。最終又は第N番目の分離装置2-Nからの排出流は、供給流の一部としてリサイクルループ3を介して反応装置1にリサイクルされる。このリサイクル流量はF5で表わされる。これにより、反応装置1の入口の合計流量は、(F1+F2+F3+F4+F5)で与えられる。また、反応装置1への全供給流の組成は、反応装置入口の各成分流量/反応装置入口の合計流量(F1+F2+F3+F4+F5)により与えられる。

【0011】さらに本発明により、第1の制御手段8と第2の制御手段9をそれぞれ介して、第1と第2の少なくとも2つの独立した制御系が設けられる。第1の制御手段8を用いる第1の制御系は、反応装置1の入口の合計流量あるいは該反応装置からの排出流量と、上記一つ又はそれ以上の分離装置の各段のいずれか一つ以上からの排出流量との一方あるいは双方を所望値に制御するためのものであり、図示の例では、反応装置1からの排出流の流量をR点で検出し、その検出した流量が目標値と一致するように、反応装置1に供給する空気又は不活性ガスの流量F3を変更している。また第2の制御系は、反応装置1への全供給流の組成或いは反応装置1の出口、又は分離装置2-A～2-Nの一つ以上のものの出口におけるガス組成を所望値に制御するためのものであり、図示の例では、反応装置1からの排出流のガス組成をR点で検出し、その検出したガス組成が設定値と一致するように、反応装置1に供給する炭化水素と酸素の流量比F1/F2を変更している。炭化水素、酸素、空気又は不活性ガス等を含む原料ガスは、反応装置又は分離装置へ直接供給されてもよいし、分離装置への供給流あ

るいは排出流に供給されてもよい。

【0012】第1の制御手段8と第2の制御手段9としては、どのようなタイプのPID (proportional-integral-derivative) 制御装置でも、またどのような種類のフィードバック型制御装置でも或いはどのような種類のフィードフォワード型制御装置でも用いることができる。図2に示されている例では、第1の制御手段8を含む制御系は、例えば反応装置出口のR点で測定した排出流量が目標値に対して増大するとき、反応装置入口での空気又は不活性ガスの供給流量F3を下げるよう流量指示調整器6を制御し、反応装置出口での排出流量を所望値に保つように機能する。

【0013】また図示の例とは異なり、第1の制御手段8が各分離装置出口のA点～N点のいずれか、例えばM点の排出流の流量を検出する場合には、M点の流量が所望値に保たれるように流量指示調整器6を制御して空気又は不活性ガスの流量F3を変更する。したがってM点の流量が設定値に対して減少するときは、空気又は不活性ガスの流量F3を増加させる方向に制御して、M点の流量を所望値に保つように動作する。

【0014】次に第2の制御手段9を含む制御系は、第2の制御手段9が例えばR点の排出流中の酸素濃度を測定し、その測定値が予め設定されている酸素濃度の目標値に対して増大するとき、反応装置入口での炭化水素と酸素の流量比（例えば酸素流量／炭化水素流量とする）の目標値を下げるよう制御する。第2の制御手段に含まれる炭化水素と酸素の流量比の制御系は、反応装置入口の炭化水素と酸素の流量比（例えば酸素流量／炭化水素流量とする）を測定し、目標値に対して増大するとき反応装置入口での酸素の流量指示調整器5を制御し、反応器入口の炭化水素と酸素の流量比を目標値に追従させ、最終的にR点の排出流中の酸素濃度を予め設定されている目標値に保つように機能する。もしくは、図示の場合と異なり、反応装置入口の炭化水素と酸素の流量比を測定し、目標値に対して増大するとき反応装置入口での炭化水素の流量指示調整器4を制御し、反応器入口の炭化水素と酸素の流量比を目標値に追従させ、最終的にR点の排出流中の酸素濃度を予め設定されている目標値に保つように機能させてよい。なお、図示の場合と異なりR点～N点の複数点について排出流中の酸素濃度を検出し制御する場合は、各検出値の加重平均、その他の適切な評価関数を使用して制御変数(CV)を構成し同様な制御手法にて目標値に保つようにする。

【0015】反応システムへの各供給ガス流量、反応装置もしくは分離装置からの排出ガス流量、あるいはリサイクルガス流量は差圧式流量計、渦式流量計、コリオリ式流量計、面積式流量計等の通常用いられているガス流量測定手段により測定される。反応装置あるいは分離装置からの排出流中の酸素濃度は、各種オンライン酸素計

や酸素濃度を測定出来る分析計等の通常用いられている酸素濃度測定手段により測定され、炭化水素濃度も赤外分析計や質量分析計等の各種オンライン分析計により測定される。なおこの場合、ガスクロマトグラフのような非連続の分析手段を用いるよりは、連続的に濃度を測定できる手段を用いることが望ましい。

【0016】分離装置は、反応装置又は分離装置からの反応生成物、副生成物あるいは不要成分を分離するものであってもよいし、また、反応装置又は分離装置からの排出流を2つ以上の流れに分離するものであってもよい。分離装置としては、吸収分離装置、凝縮分離装置、吸着分離装置、蒸留分離装置等、通常公知の分離装置を用いることができる。

【0017】本発明は、触媒の存在下で、炭化水素及び酸素含有ガスを反応させる気相酸化反応、例えばブタン、ブテン、ブタジエンなどの炭素数4の炭化水素の酸化による無水マレイン酸の製造、プロパン、プロピレンなどの炭素数3の炭化水素のアンモ酸化によるアクリロニトリルの製造、エチレンのオキシクロリネーションによる二塩化エチレンの製造に適用されることができる。

【0018】無水マレイン酸を製造する場合、原料には、炭化水素としてブタン、ブテン、ブタジエン等の炭素数4の炭化水素類が、また酸素含有ガスとして空気、酸素が富化された空気及び酸素もしくはそれらの混合ガスが、そして不活性ガスとして窒素、二酸化炭素等が、通常用いられる。触媒としてはバナジウム及びリンを主要構成元素とする複合酸化物（バナジウム-リン系複合酸化物）を活性成分とするものであり、中でもピロリン酸ジバナジルを活性成分とするものが特に好ましい。

【0019】このような触媒は、例えば、Chem. Rev. 88, 55～80頁(1988)、特開昭59-95933号公報、米国特許第4,472,527号明細書、米国特許第4,520,127号明細書等に記載された方法で製造することができる。反応は、流動床反応器又は固定床反応器を用いることができ、通常300～600℃で反応させる。

【0020】反応器から流出する反応生成ガス中には、通常、無水マレイン酸の他に、未反応の酸素及び原料炭化水素、並びに副生する一酸化炭素、二酸化炭素、水、その他の反応生成物等が含まれている。反応器から流出する反応生成ガスからの無水マレイン酸の回収は、通常、反応生成ガスと有機溶媒あるいは水性溶媒とを接触させて無水マレイン酸を該溶媒中に捕集し、該溶媒から無水マレイン酸を回収することにより行われる。

【0021】アクリロニトリルを製造する場合、原料には、炭化水素としてプロパン、プロピレン等の炭素数3の炭化水素類が、またアンモ酸化原料としてアンモニアが、酸素含有ガスとして空気、酸素が富化された空気及び酸素もしくはそれらの混合ガスが、そして不活性ガスとして窒素、二酸化炭素等が、通常用いられる。

【0022】触媒としては、V-Sb系酸化物触媒、V-Sb-W系酸化物触媒、V-Sb-Sn-Cu-Bi系酸化物触媒、V-Sb-Sn-Cu-Te系酸化物触媒、Sb-Sn系酸化物触媒、As-Sn系酸化物触媒、Mo-Sn系酸化物触媒、V-Cr系酸化物触媒、Mo-Bi-Fe-Al系酸化物触媒、Mo-Cr-Te系酸化物触媒、Mo-Bi-Cr系酸化物触媒、Cr-Sb-W系酸化物触媒、Mo-Sb-W系酸化物触媒、Mo-Bi-Cr-Nb系酸化物触媒、Mo-V-Te系酸化物触媒、Mo-V-Sb系酸化物触媒などを用いることができるが、特にモリブデン、バナジウム、及びテルル又はアンチモンのうちの少なくとも一方の元素を必須成分とする複合金属酸化物触媒が用いられる。例えば、モリブデン、バナジウム、X、Y及び酸素(Xはテルル及びアンチモンのうちの少なくとも1種、Yはニオブ、タンタル、タングステン、チタン、アルミニウム、ジルコニウム、クロム、マンガン、鉄、ルテニウム、コバルト、ロジウム、ニッケル、パラジウム、白金、ビスマス、ホウ素、インジウム、リン、ゲルマニウム、希土類元素、アルカリ金属、アルカリ土類金属からなる群から選ばれた1種以上の元素を示す)を必須成分とする複合金属酸化物触媒が好ましい。特に、これら触媒構成元素の存在割合が、下記式

$$0.25 < r Mo < 0.98$$

$$0.003 < r V < 0.5$$

$$0.003 < r X < 0.5$$

$$0 \leq r Y < 0.5$$

(但し、 $r Mo$ 、 $r V$ 、 $r X$ 、 $r Y$ は酸素を除く上記必須成分の合計に対する $Mo$ 、 $V$ 、 $X$ 及び $Y$ のモル分率を表わす)で表されるものが好ましい。

【0023】このような触媒は、特開平2-257号公報、特開平5-148212号公報、特開平5-208136号公報、特開平6-279351号公報、特開平9-157241号公報等に記載された方法で製造することができる。反応は、流動床反応器又は固定床反応器を用いることができるが、反応温度の制御のし易い流動床反応器を用いることが好ましい。反応温度は通常、200~500°Cである。反応は減圧下でも加圧下でも行なうが、通常は常圧から0.2MPaGの範囲で行われる。

【0024】反応器から流出する反応ガス中には、通常、アクリロニトリルの他に、未反応の酸素、原料炭化水素、アンモニア、並びに副生するアクリル酸、オレフィン酸、一酸化炭素、二酸化炭素、その他の反応生成物等が含まれている。通常、反応生成ガスからのアクリル酸の分離は、反応生成ガスを硫酸水溶液で洗浄して未反応アンモニアを除去し、次いで水で洗浄することによりアクリロニトリルやアクリル酸を主要液として回収することにより行われる。

【0025】

【実施例】以下、実施例により本発明を更に詳細に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り以下の実施例によって限定されるものではない。図2は、本発明の一実施例による気相酸化反応システムの構成を示す。図2中に参照番号1~9で示される要素は、図1中の同一参照番号の要素に対応している。また図2に制御装置10として示されている要素は、第1の制御手段8と第2の制御手段9の各機能を有するハードウェアの制御装置を表わしているが、必ずしも単一の装置である必要はない。第1の制御手段8と第2の制御手段9の内部には主要な処理内容がフローで示されている。制御装置10は、どのような種類のPID制御装置でもフィードバック制御装置でもよく、制御変数(CV)を入力として操作変数(MV)を演算し、出力する。

【0026】図2に示すシステムの主要な構成と動作は、図1のシステムと同様であり、一つの反応装置1と、一つ又はそれ以上の分離装置2-A~2-Nと、リサイクルループ3からなり、反応装置1には、炭化水素、酸素、空気あるいは不活性ガス、及びその他の気相原料の新規供給分が供給される。反応装置1からの反応生成物、副生成物、及び不要成分は、分離装置によって取り出され、あるいは除去される。R点には反応装置1からの排出流があり、A点には分離装置2-Aからの排出流があり、以下同様にしてN点には分離装置2-Nからの排出流がある。最終のN点の排出流は、供給流の一部として反応装置1にリサイクルされる。

【0027】第1の制御手段8では、制御変数(CV)として反応装置入口の合計流量又はR点~N点のいずれか1つ以上の点の排出流の流量をとることができる。流量は、質量流量、モル流量、体積流量等通常用いられる流量であればよい。図示の例の場合、第1の制御手段8は、反応装置1からの排出流の流量をR点で検出し、その検出結果と予め設定されている排出流量の目標値とを比較して偏差を検出し、検出した偏差量に応じた空気又は不活性ガスの供給流量に対する操作値を演算する。演算結果の操作値は、操作変数(MV)として流量指示調整器6へフィードバックされる。流量指示調整器6では、入力された操作変数(MV)の値に基づいて、反応装置1へ供給する空気又は不活性ガスの流量F3を調整する。

【0028】第2の制御手段9の処理は、システム中の酸素濃度を検出して目標とする炭化水素と酸素の流量比を求める処理と、供給原料ガスの炭化水素と酸素の流量比を検出してその流量比を目標値に調整するのに必要な酸素流量の操作値を求める処理の2つからなっている。

【0029】第1の処理では、制御変数(CV)として、R点~N点のいずれか1つ以上の点の排出流中の酸素濃度を検出し、検出した酸素濃度と予め設定されている酸素濃度目標値に基づいて操作目標とする炭化水素と酸素の流量比設定値を求める。図示の例の場合、R点で

反応装置1からの排出流の酸素濃度を検出し、得られた酸素濃度検出値と予め設定されている酸素濃度目標値とを比較して偏差を検出し、その偏差量に応じた炭化水素と酸素の流量比の目標値を演算して次の処理のための設定値としている。

【0030】第2の処理では、反応装置1への炭化水素供給流量と酸素供給流量とを検出して炭化水素と酸素の流量比を求め、求めた炭化水素と酸素の流量比の値と目標の炭化水素と酸素の流量比設定値とを比較して偏差を検出し、その偏差量に応じた操作変数(MV)の酸素流量操作値を演算して流量指示調整器5に送り、変更を指示する。流量指示調整器5では、指示された操作値に基づいて反応装置1への酸素供給流量F2を変更する。

【0031】

【発明の効果】本発明によれば、反応装置入口の合計流量を直接もしくは間接的に調整することにより、各分離装置への供給流量および各分離装置からの排出流量を所望値に保つことが可能となる。更に、反応装置出口の酸素濃度と炭化水素濃度の比を直接もしくは間接的に調整することにより、結果的に反応装置入口のガス組成を所

望値に保つことが可能となる。これにより、反応装置内の反応を安定化させることができとなり、反応転化率、主製品選択率が安定すると共に、製品や反応生成物の分離回収装置の運転の安定化も容易となることにより、リサイクルループを備えた気相酸化反応システム全体の安定運転が可能となる。

#### 【図面の簡単な説明】

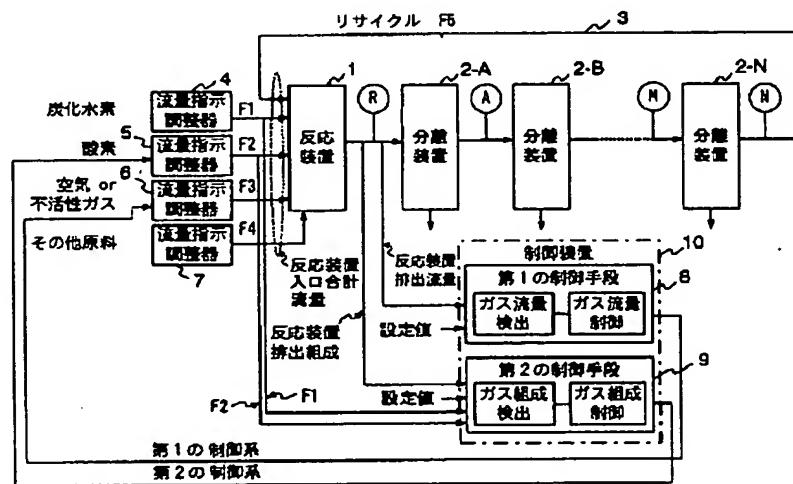
【図1】本発明による気相酸化反応システムの基本構成図である。

【図2】本発明気相酸化反応システムの1実施例構成図である。

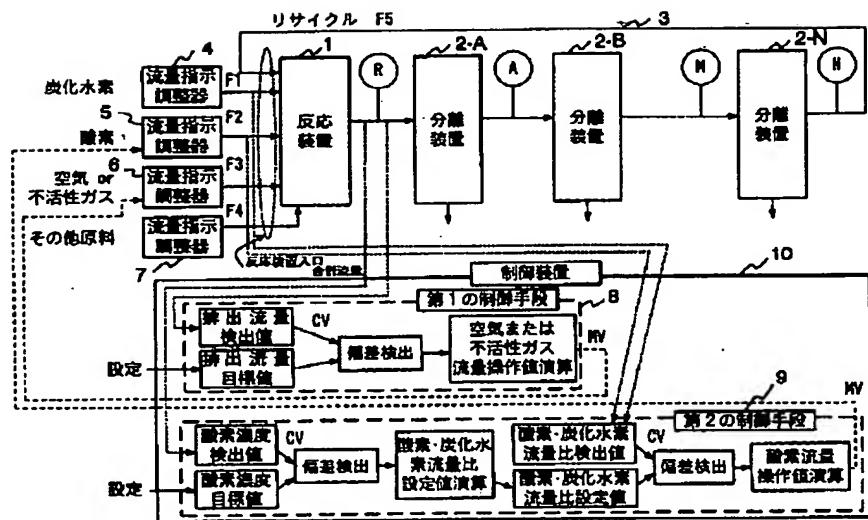
#### 【符号の説明】

- 1 反応装置
- 2-A～2-N 分離装置
- 3 リサイクルループ
- 4～7 流量指示調整器
- 8 第1の制御手段
- 9 第2の制御手段
- 10 制御装置

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(51) Int.C1.<sup>7</sup>  
C 0 7 C 21/073  
51/215  
57/145  
253/24  
255/08  
C 0 7 D 307/60

識別記号

F I  
C 0 7 C 21/073  
51/215  
57/145  
253/24  
255/08  
C 0 7 D 307/60

テーマコード(参考)

A

(72) 発明者 沢木 至  
岡山県倉敷市湖通三丁目10番地 三菱化学  
株式会社水島事業所内

(72) 発明者 井原 達也  
岡山県倉敷市湖通三丁目10番地 三菱化学  
株式会社水島事業所内